

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2004-315788

(43)Date of publication of application : 11.11.2004

(51)Int.Cl.

C08L 35/00  
C08L 25/12

(21)Application number : 2004-025549

(71)Applicant : TOSOH CORP

(22)Date of filing : 02.02.2004

(72)Inventor : TOYOMASU NOBUYUKI  
IGAI YOJIRO

(30)Priority

Priority number : 2003094888

Priority date : 31.03.2003

Priority country : JP

## (54) RESIN COMPOSITION FOR OPTICAL FILM, AND OPTICAL FILM

## (57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a resin composition excellent in heat resistance, dynamic characteristics and having excellent characteristics for optical films expressing negative birefringent characteristics, and prepare an optical film comprising the composition expressing the negative birefringent characteristics, and to provide a method for producing the resin composition.

SOLUTION: The resin composition for the optical film expressing the negative birefringence comprises 30-95 wt.% copolymer (a) comprising an  $\alpha$ -olefin residue unit and an N-phenyl-substituted maleimide residue unit and having  $5 \times 10^3$ - $5 \times 10^6$  weight average molecular weight and 70-5 wt.% acrylonitrile-styrene-based copolymer (b) satisfying a ratio expressed by the following equation: the acrylonitrile residue unit:the styrene residue unit=20:80-35:65 (weight ratio) and having  $5 \times 10^3$ - $5 \times 10^6$  weight average molecular weight.

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2004-315788

(P2004-315788A)

(43) 公開日 平成16年11月11日(2004.11.11)

(51) Int.Cl.<sup>7</sup>

C08L 35/00

C08L 25/12

F I

C08L 35/00

C08L 25/12

テーマコード (参考)

4J002

審査請求 未請求 請求項の数 10 O L (全 18 頁)

(21) 出願番号 特願2004-25549 (P2004-25549)  
 (22) 出願日 平成16年2月2日 (2004.2.2)  
 (31) 優先権主張番号 特願2003-94888 (P2003-94888)  
 (32) 優先日 平成15年3月31日 (2003.3.31)  
 (33) 優先権主張国 日本国 (JP)

(71) 出願人 000003300  
 東ソー株式会社  
 山口県周南市開成町4560番地  
 (72) 発明者 豊増 信之  
 三重県四日市市稗田3-9-20  
 (72) 発明者 猪飼 陽二郎  
 三重県四日市市大矢知町487-1  
 Fターム(参考) 4J002 BB01W BB02W BB11W BB17W BB18W  
 BC06X BC09X BG10X BH02W GP00

(54) 【発明の名称】 光学フィルム用樹脂組成物及び光学フィルム

(57) 【要約】

【課題】 耐熱性、力学特性などに優れ、負の複屈折性を示す光学フィルム用として優れた特性を有する樹脂組成物、それよりなる負の複屈折性を示す光学フィルム及びその製造方法を提供する。

【解決手段】  $\alpha$ -オレフィン残基単位とN-フェニル置換マレイミド残基単位からなり、重量平均分子量  $5 \times 10^3$  以上  $5 \times 10^6$  以下である共重合体 (a) 30~95重量%、及び、アクリロニトリル残基単位：スチレン残基単位 = 20：80~35：65 (重量比) であり、重量平均分子量  $5 \times 10^3$  以上  $5 \times 10^6$  以下であるアクリロニトリル-スチレン系共重合体 (b) 70~5重量%からなる負の複屈折性を示す光学フィルム用樹脂組成物。

【選択図】

選択図なし。

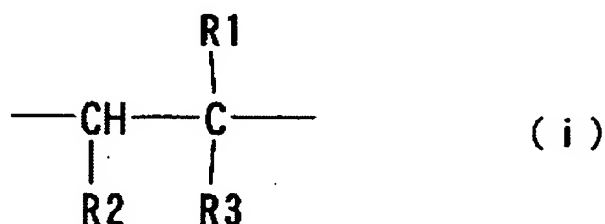
## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

下記の式 ( i ) で表される  $\alpha$ -オレフィン残基単位と下記の式 ( i i ) で表される N-フェニル置換マレイミド残基単位からなり、標準ポリスチレン換算の重量平均分子量  $5 \times 10^3$  以上  $5 \times 10^6$  以下である共重合体 ( a ) 30 ~ 95 重量%、及び、アクリロニトリル残基単位：スチレン残基単位 = 20 : 80 ~ 35 : 65 (重量比) であり、標準ポリスチレン換算の重量平均分子量  $5 \times 10^3$  以上  $5 \times 10^6$  以下であるアクリロニトリル-スチレン共重合体、アクリロニトリル-ブタジエン-スチレン共重合体から選ばれる 1 種以上のアクリロニトリル-スチレン系共重合体 ( b ) 70 ~ 5 重量%からなることを特徴とする負の複屈折性を示す光学フィルム用樹脂組成物。

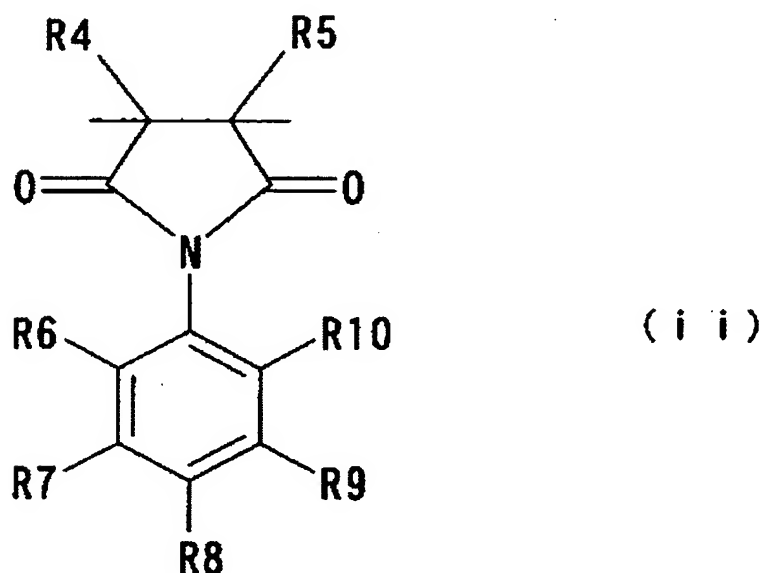
10

## 【化 1】



(ここで、R1、R2、R3はそれぞれ独立して水素又は炭素数1~6のアルキル基である。)

## 【化 2】



30

40

(ここで、R4、R5はそれぞれ独立して水素又は炭素数1~8の直鎖状若しくは分岐状アルキル基であり、R6、R7、R8、R9、R10はそれぞれ独立して水素、ハロゲン系元素、カルボン酸、カルボン酸エステル、水酸基、シアノ基、ニトロ基又は炭素数1~8の直鎖状若しくは分岐状アルキル基である。)

## 【請求項 2】

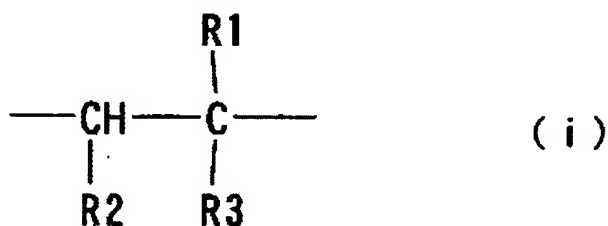
50

共重合体 (a) が N-フェニルマレイミド-イソブテン共重合体及び／又は N-(2-メチルフェニル)マレイミド-イソブテン共重合体であることを特徴とする請求項 1 に記載の負の複屈折性を示す光学フィルム用樹脂組成物。

【請求項 3】

下記の式 (i) で表される  $\alpha$ -オレフィン残基単位と下記の式 (ii) で表される N-フェニル置換マレイミド残基単位からなり、標準ポリスチレン換算の重量平均分子量  $5 \times 10^3$  以上  $5 \times 10^6$  以下である共重合体 (a) 30～95 重量%、及び、アクリロニトリル残基単位：スチレン残基単位 = 20：80～35：65 (重量比) であり、標準ポリスチレン換算の重量平均分子量  $5 \times 10^3$  以上  $5 \times 10^6$  以下であるアクリロニトリル-スチレン共重合体、アクリロニトリル-ブタジエン-スチレン共重合体から選ばれる 1 種以上のアクリロニトリル-スチレン系共重合体 (b) 70～5 重量% からなることを特徴とする負の複屈折性を示す光学フィルム。

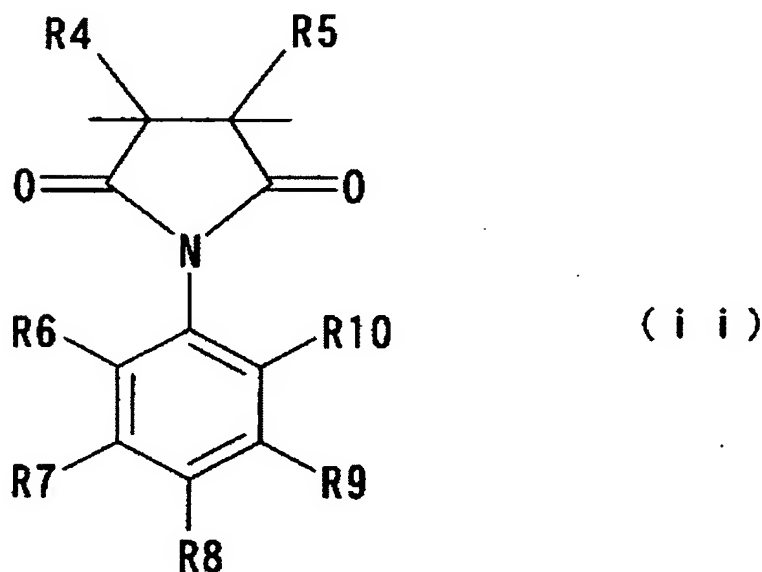
【化 3】



20

(ここで、R1、R2、R3 はそれぞれ独立して水素又は炭素数 1～6 のアルキル基である。)

【化 4】



30

40

(ここで、R4、R5 はそれぞれ独立して水素又は炭素数 1～8 の直鎖状若しくは分岐状アルキル基であり、R6、R7、R8、R9、R10 はそれぞれ独立して水素、ハロゲン系元素、カルボン酸、カルボン酸エステル、水酸基、シアノ基、ニトロ基又は炭素数 1～

50

8 の直鎖状若しくは分岐状アルキル基である。)

【請求項 4】

共重合体 (a) が N-フェニルマレイミド-イソブテン共重合体及び／又は N-(2-メチルフェニル)マレイミド-イソブテン共重合体であることを特徴とする請求項 3 に記載の負の複屈折性を示す光学フィルム。

【請求項 5】

延伸方向をフィルム面内の x 軸、延伸方向と直交するフィルム面内方向を y 軸、延伸方向と直交するフィルム面外方向を z 軸とし、x 軸方向の屈折率を  $n_x$ 、y 軸方向の屈折率を  $n_y$ 、z 軸方向の屈折率を  $n_z$  とした際の 3 次元屈折率の関係が  $n_z \geq n_y > n_x$  又は  $n_y \geq n_z > n_x$  となることを特徴とする請求項 3 又は 4 のいずれかに記載の負の複屈折性を示す光学フィルム。 10

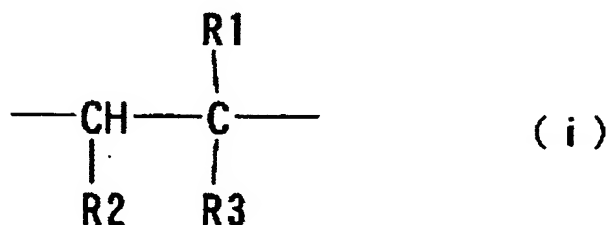
【請求項 6】

延伸方向をフィルム面内の x 軸及び y 軸、これらと直交するフィルム面外方向を z 軸とし、x 軸方向の屈折率を  $n_x$ 、y 軸方向の屈折率を  $n_y$ 、z 軸方向の屈折率を  $n_z$  とした際の 3 次元屈折率の関係が  $n_z > n_y \geq n_x$  又は  $n_z > n_x \geq n_y$  となることを特徴とする請求項 3 又は 4 のいずれかに記載の負の複屈折性を示す光学フィルム。

【請求項 7】

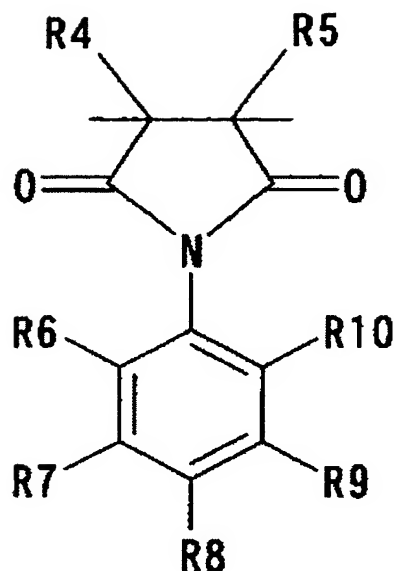
下記の式 (i) で表される  $\alpha$ -オレフィン残基単位と下記の式 (ii) で表される N-フェニル置換マレイミド残基単位からなり、標準ポリスチレン換算の重量平均分子量  $5 \times 10^3$  以上  $5 \times 10^6$  以下である共重合体 (a) 30～95 重量%、及び、アクリロニトリル残基単位：スチレン残基単位 = 20：80～35：65 (重量比) であり、標準ポリスチレン換算の重量平均分子量  $5 \times 10^3$  以上  $5 \times 10^6$  以下であるアクリロニトリル-スチレン共重合体、アクリロニトリル-ブタジエン-スチレン共重合体から選ばれる 1 種以上のアクリロニトリル-スチレン系共重合体 (b) 70～5 重量% からなる樹脂組成物をフィルム成形して、該フィルムを該樹脂組成物のガラス転移温度 - 20℃～ガラス転移温度 + 20℃ の範囲にて延伸配向に供することを特徴とする請求項 3～6 に記載の負の複屈折性を示す光学フィルムの製造方法。 20

【化 5】



(ここで、R1、R2、R3 はそれぞれ独立して水素又は炭素数 1～6 のアルキル基である。)

【化 6】



( i i )

(ここで、R 4、R 5はそれぞれ独立して水素又は炭素数 1 ～ 8 の直鎖状若しくは分岐状アルキル基であり、R 6、R 7、R 8、R 9、R 1 0 はそれぞれ独立して水素、ハロゲン系元素、カルボン酸、カルボン酸エステル、水酸基、シアノ基、ニトロ基又は炭素数 1 ～ 8 の直鎖状若しくは分岐状アルキル基である。)

【請求項 8】

延伸配向が、一軸延伸配向であることを特徴とする請求項 7 に記載の負の複屈折性を示す光学フィルムの製造方法。

【請求項 9】

延伸配向が、二軸延伸配向であることを特徴とする請求項 7 に記載の負の複屈折性を示す光学フィルムの製造方法。

【請求項 1 0】

請求項 3 ～ 6 に記載の光学フィルムよりなることを特徴とする位相差フィルム。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0 0 0 1】

本発明は、耐熱性、力学特性などに優れ、負の複屈折性を示す光学フィルム用として優れた特性を有する樹脂組成物、それよりなる負の複屈折性を示す光学フィルム及びその製造方法に関するものである。

【背景技術】

【0 0 0 2】

近年、ブラウン管型テレビモニターに代わる薄型液晶表示素子や、エレクトロルミネッセンス素子などが開発され、光学異方性を制御したフィルム材料が要求されている。透明樹脂材料は光学フィルムとして軽量性、生産性及びコストの面から多用される状況にある。

【0 0 0 3】

従来、透明樹脂材料の光学異方性を発現させる方法として、フィルムの延伸配向が行われている。この延伸配向によれば、ポリメチルメタクリレート（以下、P M M A と称する。）やポリスチレン（以下、P S と称する。）よりなるフィルムは負の複屈折性を示し、

ポリカーボネート（以下、PCと称する。）や非晶性の環状ポリオレフィン（以下、APOと称する。）よりなるフィルムは正の複屈折性を示すことが知られている（例えば、非特許文献1、非特許文献2参照。）。

【0004】

しかしながら、PMMAやPSはガラス転移温度（以下、T<sub>g</sub>と称する。）が100℃付近にあり、耐熱性が不十分なこと、脆いことなどから用途に制限を受けていた。一方、PCやAPOなどはT<sub>g</sub>が140℃程度であり、耐熱性や力学特性に優れるものではあるが正の複屈折性を示す材料であり、透明耐熱性を示し力学的にも優れる負の複屈折性を示す材料はなく、光学フィルムとしては、専ら正の複屈折性を示す樹脂材料を用いて製造されており、負の複屈折性を示す耐熱性の光学フィルムがないのが現状である。

10

【0005】

また、マレイミド系共重合体として、フェニルマレイミド残基と $\alpha$ -オレフィン残基からなる共重合体は、スチレン残基とアクリロニトリル残基からなる共重合体とのブレンドにおいて、特定の割合範囲内で熱力学的に混和性を示すことが知られている（例えば、特許文献3参照。）。

【0006】

しかし、フェニルマレイミド残基と $\alpha$ -オレフィン残基からなる共重合体は、スチレン残基とアクリロニトリル残基からなる共重合体とのブレンド物及び該ブレンド物からなるフィルムの特異な光学特性に関する情報はない。

【0007】

【非特許文献1】小池康博著、「高分子のOne Point 10高分子の光物性」共立出版、2000年5月10日発行

20

【0008】

【非特許文献2】南 幸治著、「機能材料2000年8月号 Vol. 20、No. 8」シーエムシー出版、2000年8月5日発行、p23～33

【特許文献1】米国特許第4605700号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0009】

本発明は上記事実に鑑みなされたものであり、その目的とするところは、耐熱性、力学特性などに優れ、負の複屈折性を示す光学フィルム用として優れた特性を有する樹脂組成物、それよりなる負の複屈折性を示す光学フィルム及びその製造方法を提供することにある。

30

【課題を解決するための手段】

【0010】

本発明者らは、上記課題に関し鋭意検討した結果、 $\alpha$ -オレフィン残基単位とN-フェニル置換マレイミド残基単位からなる特定の共重合体及び特定のアクリロニトリル-スチレン系共重合体からなる樹脂組成物を用いてなる光学フィルムが負の複屈折性を示す光学フィルムとなることを見出し、本発明を完成するに至った。

【0011】

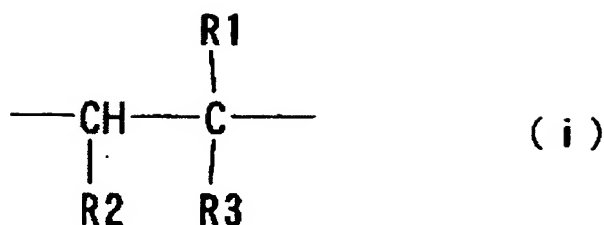
すなわち、本発明は、下記の式(i)で表される $\alpha$ -オレフィン残基単位と下記の式(ii)で表されるN-フェニル置換マレイミド残基単位からなり、標準ポリスチレン換算の重量平均分子量 $5 \times 10^3$ 以上 $5 \times 10^6$ 以下である共重合体(a)30～95重量%、及び、アクリロニトリル残基単位：スチレン残基単位＝20：80～35：65（重量比）であり、標準ポリスチレン換算の重量平均分子量 $5 \times 10^3$ 以上 $5 \times 10^6$ 以下であるアクリロニトリル-スチレン共重合体、アクリロニトリル-ブタジエン-スチレン共重合体から選ばれる1種以上のアクリロニトリル-スチレン系共重合体(b)70～5重量%からなることを特徴とする負の複屈折性を示す光学フィルム用樹脂組成物、それからなる負の複屈折性を示す光学フィルム及び該光学フィルムの製造方法に関するものである。

40

【0012】

50

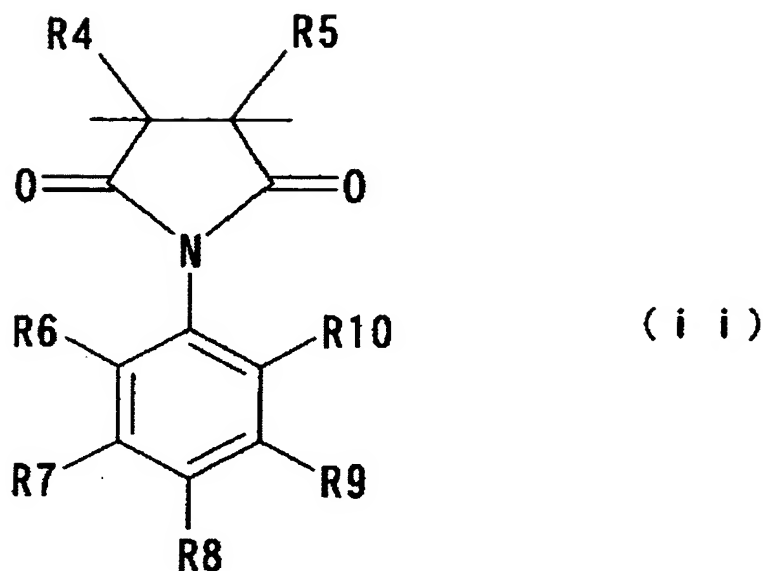
【化 1】



(ここで、R 1、R 2、R 3 はそれぞれ独立して水素又は炭素数 1 ～ 6 のアルキル基である。)

【 0 0 1 3 】

【化 2】



(ここで、R 4、R 5 はそれぞれ独立して水素又は炭素数 1 ～ 8 の直鎖状若しくは分岐状アルキル基であり、R 6、R 7、R 8、R 9、R 10 はそれぞれ独立して水素、ハロゲン系元素、カルボン酸、カルボン酸エステル、水酸基、シアノ基、ニトロ基又は炭素数 1 ～ 8 の直鎖状若しくは分岐状アルキル基である。)

本発明に用いられる共重合体 (a) は、標準ポリスチレン換算の重量平均分子量  $5 \times 10^3$  以上  $5 \times 10^6$  以下であり、上記の式 (i) で示される  $\alpha$ -オレフィン残基単位と上記の式 (ii) で表される N-フェニル置換マレイミド残基単位からなる共重合体である。ここで、重量平均分子量は、ゲル・パーミエーション・クロマトグラフィー (以下、GPC と称する。) による共重合体の溶出曲線を標準ポリスチレン換算値として測定することができる。そして、共重合体 (a) のポリスチレン換算の重量平均分子量が  $5 \times 10^3$  未満である場合、得られる樹脂組成物を光学フィルムとして成形加工する際の成形加工が困難となると共に、得られる光学フィルムは脆いものとなる。一方、重量平均分子量  $5 \times 10^6$  を越える場合、得られる樹脂組成物を光学フィルムとして成形加工する際の成形加工が困難となる。

20

30

40

50



また、本発明に用いられる共重合体（a）は、特に耐熱性、機械的性質に優れた樹脂組成物が得られることから式（i）で示される $\alpha$ -オレフィン残基単位：式（ii）で示されるN-フェニル置換マレイミド残基単位（モル比）＝70：30～30：70であることが好ましく、特に式（i）で示される $\alpha$ -オレフィン残基単位及び式（ii）で示されるN-フェニル置換マレイミド残基単位を交互に共重合した交互共重合体であることが好ましい。

共重合体 (a) を構成する式 (i) で示される  $\alpha$ -オレフィン残基単位における R 1、R 2、R 3 はそれぞれ独立して水素又は炭素数 1～6 のアルキル基であり、炭素数 1～6 のアルキル基としては、例えばメチル基、エチル基、n-プロピル基、i-プロピル基、n-ブチル基、s-ブチル基、t-ブチル基、n-ペンチル基、2-ペンチル基、n-ヘキシル基、2-ヘキシル基等を挙げることができる。ここで、R 1、R 2、R 3 が炭素数 6 を越えるアルキル置換基である場合、共重合体のガラス転移温度が著しく低下する、共重合体が結晶性となり透明性を損なうなどの問題がある。そして、式 (i) で示される  $\alpha$ -オレフィン残基単位を誘導する具体的な化合物としては、例えばイソブテン、2-メチル-1-ブテン、2-メチル-1-ペンテン、2-メチル-1-ヘキセン、2-メチル-1-ヘプテン、1-イソオクテン、2-メチル-1-オクテン、2-エチル-1-ペンテン、2-メチル-2-ペンテン、2-メチル-2-ヘキセン、エチレン、プロピレン、1-ブテン、1-ヘキセンなどが挙げられ、その中でも 1，2-ジ置換オレフィン類に属する  $\alpha$ -オレフィンが好ましく、特に耐熱性、透明性、力学特性に優れる共重合体 (a) が得られることからイソブテンであることが好ましい。また、 $\alpha$ -オレフィン残基単位は 1 種又は 2 種以上組み合わせられたものでもよく、その比率は特に制限はない。

共重合体 (a) を構成する式 (i i) で示される N-フェニル置換マレイミド残基単位における R 4、R 5 はそれぞれ独立して水素又は炭素数 1~8 の直鎖状若しくは分岐状アルキル基であり、炭素数 1~8 の直鎖状又は分岐状アルキル基としては、例えばメチル基、エチル基、n-プロピル基、i-プロピル基、n-ブチル基、s-ブチル基、t-ブチル基、n-ペンチル基、2-ペンチル基、n-ヘキシル基、2-ヘキシル基、n-ヘプチル基、2-ヘプチル基、3-ヘプチル基、n-オクチル基、2-オクチル基、3-オクチル基等を挙げることができる。また、R 6、R 7、R 8、R 9、R 10 はそれぞれ独立して水素、ハロゲン系元素、カルボン酸、カルボン酸エステル、水酸基、シアノ基、ニトロ基又は炭素数 1~8 の直鎖状若しくは分岐状アルキル基であり、ハロゲン系元素としては、例えばフッ素、臭素、塩素、碘素等を挙げることができ、カルボン酸エステルとしては、例えばメチルカルボン酸エステル、エチルカルボン酸エステル等を挙げることができ、炭素数 1~8 の直鎖状又は分岐状アルキル基としては、例えばメチル基、エチル基、n-プロピル基、i-プロピル基、n-ブチル基、s-ブチル基、t-ブチル基、n-ペンチル基、2-ペンチル基、n-ヘキシル基、2-ヘキシル基、n-ヘプチル基、2-ヘプチル基、3-ヘプチル基、n-オクチル基、2-オクチル基、3-オクチル基等を挙げることができる。ここで、R 4、R 5、R 6、R 7、R 8、R 9、R 10 が炭素数 8 を越えるアルキル置換基の場合、共重合体のガラス転移温度が著しく低下する、共重合体が結晶性となり透明性を損なうなどの問題がある。

そして、式(i i)で示されるN-フェニル置換マレイミド残基単位を誘導する化合物としては、例えばマレイミド化合物のN置換基として無置換フェニル基又は置換フェニル基を導入したマレイミド化合物を挙げることができ、具体的にはN-フェニルマレイミド、N-(2-メチルフエニル)マレイミド、N-(2-エチルフエニル)マレイミド、N-(2-n-プロピルフエニル)マレイミド、N-(2-イソプロピルフエニル)マレイミド、N-(2-n-ブチルフエニル)マレイミド、N-(2-s-ブチルフエニル)マレイミド、N-(2-t-ブチルフエニル)マレイミド、N-(2-n-ペンチルフエニ

50

ル) マレイミド、N-(2-*t*-ペンチルフェニル) マレイミド、N-(2, 6-ジメチルフェニル) マレイミド、N-(2, 6-ジエチルフェニル) マレイミド、N-(2, 6-ジ-*n*-プロピルフェニル) マレイミド、N-(2, 6-ジ-イソプロピルフェニル) マレイミド、N-(2-メチル, 6-エチルフェニル) マレイミド、N-(2-メチル, 6-イソプロピルフェニル) マレイミド、N-(2-クロロフェニル) マレイミド、N-(2-プロモフェニル) マレイミド、N-(2, 6-ジクロロフェニル) マレイミド、N-(2, 6-ジプロモフェニル) マレイミド、N-2-ピフェニルマレイミド、N-2-ジフェニルエーテルマレイミド、N-(2-シアノフェニル) マレイミド、N-(2-ニトロフェニル) マレイミド、N-(2, 4, 6-トリメチルフェニル) マレイミド、N-(2, 4-ジメチルフェニル) マレイミド、N-パープロモフェニルマレイミド、N-(2-メチル, 4-ヒドロキシフェニル) マレイミド、N-(2, 6-ジエチル, 4-ヒドロキシフェニル) マレイミドなどが挙げられ、その中でもN-フェニルマレイミド、N-(2-メチルフェニル) マレイミド、N-(2-エチルフェニル) マレイミド、N-(2-*n*-プロピルフェニル) マレイミド、N-(2-イソプロピルフェニル) マレイミド、N-(2-*n*-ブチルフェニル) マレイミド、N-(2-*s*-ブチルフェニル) マレイミド、N-(2-*t*-ブチルフェニル) マレイミド、N-(2-*n*-ペンチルフェニル) マレイミド、N-(2-*t*-ペンチルフェニル) マレイミド、N-(2, 6-ジメチルフェニル) マレイミド、N-(2, 6-ジエチルフェニル) マレイミド、N-(2, 6-ジ-*n*-プロピルフェニル) マレイミド、N-(2, 6-ジ-イソプロピルフェニル) マレイミド、N-(2-メチル, 6-エチルフェニル) マレイミド、N-(2-メチル, 6-イソプロピルフェニル) マレイミド、N-(2-クロロフェニル) マレイミド、N-(2-プロモフェニル) マレイミド、N-(2, 6-ジクロロフェニル) マレイミド、N-(2, 6-ジプロモフェニル) マレイミド、N-2-ピフェニルマレイミド、N-2-ジフェニルエーテルマレイミド、N-(2-シアノフェニル) マレイミド、N-(2-ニトロフェニル) マレイミドが好ましく、特に耐熱性、透明性、力学特性にも優れる共重合体 (a) が得られることからN-フェニルマレイミド、N-(2-メチルフェニル) マレイミドであることが好ましい。また、N-フェニル置換マレイミド残基単位は1種又は2種以上組み合わせられたものでもよく、その比率は特に制限はない。

## 【0018】

該共重合体 (a) は、上記した式 (i) で示される  $\alpha$ -オレフィン残基単位を誘導する化合物及び式 (ii) で示されるN-フェニル置換マレイミド残基単位を誘導する化合物を公知の重合法を利用することにより得ることができる。公知の重合法としては、例えば塊状重合法、溶液重合法、懸濁重合法、乳化重合法などを挙げることができる。また、別法として、上記した式 (i) で示される  $\alpha$ -オレフィン残基単位を誘導する化合物と無水マレイン酸とを共重合することにより得られた共重合体に、さらに例えばアニリン、2~6位に置換基を導入したアニリンを反応し、脱水閉環イミド化反応を行うことにより得られることもできる。

## 【0019】

共重合体 (a) としては、上記した式 (i) で示される  $\alpha$ -オレフィン残基単位及び式 (ii) で示されるN-フェニル置換マレイミド残基単位からなる共重合体であり、例えばN-フェニルマレイミド-イソブテン共重合体、N-フェニルマレイミド-エチレン共重合体、N-フェニルマレイミド-2-メチル-1-ブテン共重合体、N-(2-メチルフェニル) マレイミド-イソブテン共重合体、N-(2-メチルフェニル) マレイミド-エチレン共重合体、N-(2-メチルフェニル) マレイミド-2-メチル-1-ブテン共重合体、N-(2-エチルフェニル) マレイミド-イソブテン共重合体、N-(2-エチルフェニル) マレイミド-エチレン共重合体、N-(2-エチルフェニル) マレイミド-2-メチル-1-ブテン共重合体等が挙げられ、その中でも特に耐熱性、透明性、力学特性にも優れるものとなることから、N-フェニルマレイミド-イソブテン共重合体、N-(2-メチルフェニル) マレイミド-イソブテン共重合体が好ましい。

## 【0020】

本発明に用いられるアクリロニトリルースチレン系共重合体 (b) は、アクリロニトリル残基単位：スチレン残基単位＝20：80～35：65（重量比）であり、標準ポリスチレン換算の重量平均分子量 $5 \times 10^3$ 以上 $5 \times 10^6$ 以下であるアクリロニトリルースチレン共重合体及び／又はアクリロニトリループタジエンスチレン共重合体である。ここで、重量平均分子量は、GPCによる共重合体の溶出曲線を標準ポリスチレン換算値として測定することができる。そして、アクリロニトリルースチレン系共重合体 (b) のポリスチレン換算の重量平均分子量が $5 \times 10^3$ 未満である場合、得られる樹脂組成物を光学フィルムとして成形加工する際の成形加工が困難となると共に、得られる光学フィルムは脆いものとなる。一方、重量平均分子量 $5 \times 10^6$ を越える場合、得られる樹脂組成物を光学フィルムとして成形加工する際の成形加工が困難となる。また、アクリロニトリルースチレン系共重合体 (b) において、アクリロニトリル残基単位：スチレン残基単位＝20：80を下回る場合、共重合体 (a) との樹脂組成物における力学特性が低下し、非常に脆くなるなどの問題を有する。一方、アクリロニトリル残基単位：スチレン残基単位＝35：65を上回る場合、アクリロニトリルの変質が生じ易く、得られる樹脂組成物の色相が悪化したり、吸湿性が悪化するなどの問題がある。そして、アクリロニトリルースチレン系共重合体 (b) として、アクリロニトリループタジエンスチレン共重合体を用いる場合、特に力学特性に優れた樹脂組成物となることから、アクリロニトリル残基単位とスチレン残基単位の合計100重量部に対し、ブタジエン残基単位1～40重量部としたアクリロニトリループタジエンスチレン共重合体であることが好ましい。また、本発明に用いられるアクリロニトリルースチレン系共重合体 (b) としては、スチレン残基単位の一部又は全部を $\alpha$ -メチルスチレン残基単位としたアクリロニトリルースチレン系共重合体を用いることもできる。

10

20

## 【0021】

本発明に用いられるアクリロニトリルースチレン系共重合体 (b) の合成方法としては、公知の重合法が利用でき、例えば塊状重合法、溶液重合法、懸濁重合法、乳化重合法などにより製造することが可能である。また、市販品として入手したものであってもよい。

## 【0022】

本発明の負の複屈折性を示す光学フィルム用樹脂組成物は、共重合体 (a) 30～95重量%及びアクリロニトリルースチレン系共重合体 (b) 70～5重量%からなり、特に耐熱性と力学特性のバランスに優れた樹脂組成物となることから共重合体 (a) 40～90重量%及びアクリロニトリルースチレン系共重合体 (b) 60～10重量%からなることが好ましい。ここで、共重合体 (a) が30重量%未満である場合、得られる樹脂組成物の耐熱性が低下する。一方、共重合体 (a) が95重量%を越える場合、得られる樹脂組成物は非常に脆いものとなり、力学特性の低いものとなる。

30

## 【0023】

本発明の負の複屈折性を示す光学フィルム用樹脂組成物の調整方法としては、共重合体 (a) 及びアクリロニトリルースチレン系共重合体 (b) からなる樹脂組成物を得ることが可能であれば如何なる方法を用いてもよく、例えばインターナルミキサーや押出機など混練機により加熱溶融混練することにより調整する方法、溶剤を用い溶液ブレンドにより調整する方法、等を挙げることができる。

40

## 【0024】

本発明の負の複屈折性を示す光学フィルム用樹脂組成物は、本発明の目的を逸脱しない限りにおいて必要に応じて熱安定剤、紫外線安定剤などの添加剤や可塑剤を配合していてもよく、これら添加剤や可塑剤としては通常樹脂材料用として公知のものを使用してもよい。

## 【0025】

本発明の負の複屈折性を示す光学フィルム用樹脂組成物をフィルム化した際、該フィルムは負の複屈折性を示す光学フィルムとして用いられるものであり、特に負の複屈折性を示す位相差フィルムとして用いることが好ましい。

## 【0026】

50

以下に、負の複屈折性を示す光学フィルム及びその製造方法の一例について説明する。

【0027】

本願発明の負の複屈折性を示す光学フィルムは、上記した式 ( i ) で表される  $\alpha$ -オレフィン残基単位と上記の式 ( i i ) で表される N-フェニル置換マレイミド残基単位からなり、標準ポリスチレン換算の重量平均分子量  $5 \times 10^3$  以上  $5 \times 10^6$  以下である共重合体 ( a ) 30 ~ 95 重量%、及び、アクリロニトリル残基単位：スチレン残基単位 = 20 : 80 ~ 35 : 65 (重量比) であり、標準ポリスチレン換算の重量平均分子量  $5 \times 10^3$  以上  $5 \times 10^6$  以下であるアクリロニトリル-スチレン共重合体、アクリロニトリル-ブタジエン-スチレン共重合体から選ばれる 1 種以上のアクリロニトリル-スチレン系共重合体 ( b ) 70 ~ 5 重量% からなる樹脂組成物よりなるものであり、例えば該樹脂組成物をフィルム成形に供し、フィルムとし、該フィルムを延伸加工に供する事により負の複屈折性を示す光学フィルムとすることができる。

【0028】

その際のフィルム成形法としては、例えば押出成形法、溶液流延法 (溶液キャスト法と称する場合もある。) などの成形法によりフィルムを得ることができる。

【0029】

以下に、押出成形法によるフィルム化に関し詳細に説明する。

【0030】

上記した樹脂組成物を例えば T 型ダイスと称されるような薄いダイスを装着した一軸押し出し機、二軸押し出し機等の押し出し機に供し、加熱溶解を行いながら該ダイスの隙間を通して押し出し、得られるフィルムの引き取りを行うことにより任意の厚みを有するフィルムとすることができる。この際、フィルム成形に際しては、成形時のガス発泡などによる外観不良を抑制するために、樹脂組成物を予め 80 ~ 130 °C の温度範囲にて加熱乾燥を行うことが望ましい。また、所望のフィルム厚みと光学純度に応じて異物を濾過するためのフィルターを設置し、押出成形を行うことが望ましい。さらに、熔融状態のフィルムを効率よく冷却固化し、外観に優れたフィルムを効率よく製造するために低温度金属ロールやスチールベルトなどを設置し、押出成形を行うことが望ましい。

【0031】

押出成形条件としては、加熱、剪断応力によって樹脂組成物が熔融流動する  $T_g$  よりも十分に高い温度にて剪断速度  $1000 \text{ sec}^{-1}$  未満の条件で押出成形を行うことが望ましい。

【0032】

また、フィルムを押出成形する際には、得られたフィルムを延伸加工に供し光学フィルムとする際に 3 次元屈折率の関係が安定した光学フィルムが効率よく得られることから、フィルムの流動方向、幅方向及び厚み方向の分子鎖配向度ができるだけ一様となる条件制御を行うことが好ましく、そのような方法としては、広く知られる成形加工技術を用いることができる。例えばダイスから吐出する樹脂組成物を位置によって均一にする方法、吐出後のフィルム冷却工程を均一にする方法及びこれに関する装置などを用いることができる。

【0033】

以下に、溶液キャスト法によるフィルム化に関し詳細に説明する。

【0034】

上記した樹脂組成物に対し可溶性を示す溶剤に該樹脂組成物を溶解し溶液とし、該溶液を流延した後、溶剤を除去することによりフィルムとすることができる。

【0035】

その際の溶剤としては、樹脂組成物が可溶性を示す溶剤であれば如何なるものでもよく、その中から必要に応じて 1 種又は 2 種以上を混合して用いることができ、例えば塩化メチレン、クロロホルム、クロルベンゼン、トルエン、キシレン、メチルエチルケトン、アセトニトリル、その混合物などを挙げることができる。さらに、流延後の溶剤除去の際の溶剤揮発速度を制御する目的から可溶性を示す溶剤 (例えば塩化メチレン、クロロホルム

など)と貧溶剤(例えばメタノール、エタノール等のアルコール類)を組み合わせることもできる。

【0036】

溶液キャスト法による基材の乾燥においては、加熱条件の設定により、フィルム内に気泡又は内部空隙を形成しないように行うことが重要であり、後に続く2次成形加工である延伸加工操作時点にて残留溶剤濃度が2wt%以下であることが望ましい。また、延伸加工後に得られるフィルムに均一な負の複屈折性を発現させるためには、1次成形加工により得られたフィルムに不均一な配向や残留歪みがなく、光学的に等方性であることが望ましく、そのような方法として溶液キャスト法が好ましい。

【0037】

そして、熔融押出法、溶液キャスト法等の成形法により得られたフィルムを延伸加工に供し共重合体の分子鎖を配向させることにより、負の複屈折性を発現させるものである。分子鎖を配向させる方法としては、分子鎖の配向が可能であれば如何なる方法を用いることも可能であり、例えば延伸、圧延、引き取り等の各種方法を用いることができ、その中でも、特に生産効率がよく、負の複屈折性を有する光学フィルムを生産することが可能となることから、延伸により製造することが好ましく、その際には、例えば自由幅一軸延伸、定幅一軸延伸等の一軸延伸法；逐次二軸延伸、同時二軸延伸等の二軸延伸法等を用いることが可能である。このほか圧延などを行う装置としては、例えばロール延伸機などが知られている。このほかにもテンター型延伸機、小型の実験用延伸装置として引張試験機、一軸延伸機、逐次二軸延伸機、同時二軸延伸機のいずれもが使用可能な装置である。

10

20

【0038】

延伸加工を行う際には、効率よく負の複屈折性を示すことで位相差フィルムとして適した光学フィルムを生産効率よく製造することが可能となることから、上述の該樹脂組成物の $T_g - 20^\circ\text{C} \sim T_g + 20^\circ\text{C}$ の範囲内で延伸加工を行うことが好ましい。ここで、 $T_g$ とは当該樹脂組成物の貯蔵弾性率が低下し始める温度から損失弾性率>貯蔵弾性率なる関係を示す温度域にて、高分子鎖の配向が緩和により消失する温度以下の領域を指すものであり、示差走査型熱量計(DSC)などにより測定することが可能である。

【0039】

また、延伸の際の延伸操作である延伸温度、フィルムを延伸させる際の歪み速度、変形率などは本発明の目的を達成できる限りにおいて適宜選択を行えばよく、その際には、「高分子加工 ONE Point 2 (フィルムをつくる)」(松本喜代一著、高分子学会編集、共立出版、1993年2月15日発行)などを参考にすればよい。

30

【0040】

なお、本発明の光学フィルム用樹脂組成物及び光学フィルム、特に位相差フィルムにおいては、位相差量を用いることにより複屈折特性を把握することが可能である。ここでいう位相差量の定義は、当該樹脂組成物からなるフィルムである場合、延伸加工することにより得られるフィルムの面内方向であるx軸方向及びy軸方向、面外方向であるz軸方向の3次元屈折率である $n_x$ 、 $n_y$ 、 $n_z$ の差分に該フィルム厚み(d)を乗じた値として表すことができる。この場合、屈折率の差分として、具体的にはフィルム面内の屈折率の差分； $n_x - n_y$ 、フィルム面外の屈折率の差分； $n_x - n_z$ 、 $n_y - n_z$ を挙げることができる。そして、光学特性を位相差量で評価する際には、フィルム面内位相差量； $R_e$ 又は $R_{exy} = (n_x - n_y)d$ 、フィルム面外位相差量； $R_e$ 又は $R_{exz} = (n_x - n_z)d$ 、 $R_e$ 又は $R_{eyz} = (n_y - n_z)d$ 、等として表すことも有効である。

40

【0041】

上記樹脂組成物からなる未配向のフィルムを一軸延伸配向させてなる光学フィルムは、図1に示すように延伸方向をフィルム面内のx軸、x軸と直交するフィルム面内方向をy軸、x軸と直交するフィルム面外方向をz軸とし、x軸方向の屈折率を $n_x$ 、y軸方向の屈折率を $n_y$ 、z軸方向の屈折率を $n_z$ とした場合、図2に示す3次元屈折率の関係 $n_z \geq n_y > n_x$ 又は $n_y \geq n_z > n_x$ となる負の複屈折性を示す光学フィルムとなる。

【0042】

50

また、上記樹脂組成物からなる未配向のフィルムを二軸延伸配向させてなる光学フィルムは、図1に示すように延伸方向をフィルム面内のx軸及びy軸とし、これらと直交するフィルム面外の垂直方向をz軸とし、x軸方向の屈折率を $n_x$ 、y軸方向の屈折率を $n_y$ 、z軸方向の屈折率を $n_z$ とした場合、図3に示す3次元屈折率の関係 $n_z > n_y \geq n_x$ 又は $n_z > n_x \geq n_y$ となる負の複屈折性を示す光学フィルムとなる。この際の $n_y$ と $n_x$ の関係は、2軸延伸加工の際の成形加工条件であるx軸とy軸の延伸比率により制御することが可能となる。

#### 【0043】

本発明の負の複屈折性を示す光学フィルムは、本発明の目的を逸脱しない限りにおいて必要に応じて熱安定剤、紫外線安定剤などの添加剤や可塑剤を配合されたものであってもよく、これら可塑剤や添加剤としては樹脂材料用として公知のものを使用することができる。また、本発明の負の複屈折性を示す光学フィルムにおいては、該光学フィルムの表面を保護することを目的としてハードコートなどを施していてもよく、ハードコート剤として公知のものをを用いることができる。

#### 【0044】

本発明の負の複屈折性を示す光学フィルムは屈折率が1.50以上であることが好ましく、LCDなどの光学デバイス製造上及び光学デバイスとしての実用耐熱性の面からT<sub>g</sub>が100℃以上、好ましくは120℃以上、特に好ましくは140℃以上を示すものであることが好ましい。

#### 【0045】

本発明の負の複屈折性を示す光学フィルムは、単独での使用以外に、同種光学材料及び／又は異種光学材料と積層して用いることによりさらに光学特性を制御したものとすることができる。この際に積層される光学材料としては、ポリビニルアルコール／色素／アセチルセルロースなどの組み合わせからなる偏光板、ポリカーボネート製延伸配向フィルムなどを挙げられるがこれに制限されるものではない。

#### 【0046】

本発明の負の複屈折性を示す光学フィルムは、液晶表示素子用の光学補償部材として好適に用いられる。そのようなものとしては、例えばSTN型LCD、TFT-TN型LCD、OCB型LCD、VA型LCD、IPS型LCDなどのLCD用の位相差フィルム；1／2波長板；1／4波長板；逆波長分散特性フィルム；光学補償フィルム；カラーフィルター；偏光板との積層フィルム；偏光板光学補償フィルムなどが挙げられる。また、本発明の応用としての用途はこれに制限されるものではなく、負の複屈折性を利用する場合には広く利用できる。

#### 【発明の効果】

#### 【0047】

本発明の光学フィルム用樹脂組成物は、耐熱性、力学特性などに優れ、負の複屈折性を示す光学フィルム用として優れた特性を有する樹脂組成物であり、それよりなる光学フィルムは、耐熱性、力学特性などに優れ、負の複屈折性を必要とする光学フィルムに好適に用いることができる。

#### 【実施例】

#### 【0048】

以下に、本発明を実施例にて具体的に説明するが、本発明はこれらに制限されるものではない。各物性値の測定方法を以下に示す。

#### 【0049】

～光線透過率の測定～

透明性の一評価として、JIS K 7150（1981年版）に準拠して光線透過率の測定を行った。

#### 【0050】

～ヘーズの測定～

透明性の一評価として、JIS K 7150（1981年版）に準拠してヘーズの測

定を行った。

【 0 0 5 1 】

～複屈折性の正負判定～

高分子素材の偏光顕微鏡入門（栗屋裕著，アグネ技術センター版，第5章，pp 78～82，（2001））に記載の偏光顕微鏡を用いたλ/4板による加色判定法により複屈折性の正負判定を行った。

【 0 0 5 2 】

～位相差量の測定～

高分子素材の偏光顕微鏡入門（栗屋裕著，アグネ技術センター版，第5章，pp 94～96，（2001））に記載のセナルモン・コンペンセーターを用いた偏光顕微鏡（S e 10 n a r m o n t 干渉法）により位相差量の測定を行った。

【 0 0 5 3 】

～屈折率の測定～

J I S K 7 1 4 2 （1981年版）に準拠して測定した。

【 0 0 5 4 】

～ガラス転移温度の測定～

示差走査型熱量計（セイコー電子工業（株）製、商品名D S C 2 0 0 0）を用い、10℃/min. の昇温速度にて測定した。

【 0 0 5 5 】

～重量平均分子量及び数平均分子量の測定～

ゲル・パーミエーション・クロマトグラフィー（GPC）（東ソー（株）製、商品名H L C - 8 0 2 A）を用い測定した溶出曲線により、標準ポリスチレン換算値として重量平均分子量（M w）、数平均分子量（M n）及びその比である分子量分布（M w / M n）を測定した。

20

【 0 0 5 6 】

～3次元屈折率の測定～

試料傾斜型自動複屈折計（王子計測機器（株）製、商品名K O B R A - 2 1）を用いて測定した。

【 0 0 5 7 】

～力学特性の判定～

溶液キャスト法によりフィルムを作成する時の溶剤を揮発することにより発生するフィルムが収縮する際の亀裂の有無を目視にて確認した。亀裂が確認できたものは、フィルム収縮により破壊が起こるものであり、力学特性に劣るものとした。

30

【 0 0 5 8 】

実施例 1

1 リッターオートクレーブ中に重合溶媒としてトルエン400ml、重合開始剤としてパーブチルネオデカノエート0.001モル、N-フェニルマレイミド0.42モル、イソブテン4.05モルとを仕込み、重合温度60℃、重合時間5時間の重合条件にて重合反応を行い、N-フェニルマレイミド-イソブテン共重合体（重量平均分子量（M w）= 162000、重量平均分子量（M w）/数平均分子量（M n）= 2.6）を得た。

40

【 0 0 5 9 】

そして、N-フェニルマレイミド-イソブテン共重合体50重量%及びアクリロニトリル-スチレン共重合体（ダイセルポリマー製、商品名セビアンN080、重量平均分子量（M w）= 130000、アクリロニトリル残基単位：スチレン残基単位（重量比）= 29：71）50重量%からなるブレンド物を調整し、該ブレンド物の濃度が25重量%となるように塩化メチレン溶液を調整し、該塩化メチレン溶液をポリエチレンテレフタレートフィルム（以下、PETフィルムと略記する。）上に流延し、溶剤を揮発させて固化、剥離させることによりフィルムを得た。得られた剥離後のフィルムを更に100℃にて4時間、110℃から130℃にかけて10℃間隔にてそれぞれ1時間乾燥し、その後、真空乾燥機にて120℃で4時間乾燥して約100μmの厚みを有するフィルムを得た。

50

## 【 0 0 6 0 】

得られたフィルムは、光線透過率 92 %、ヘイズ 0.3 %、屈折率 1.57、ガラス転移温度 (T<sub>g</sub>) 150℃であり、このフィルムに亀裂は見られなかった。

## 【 0 0 6 1 】

該フィルムから 5 cm×5 cmの小片を切り出し、二軸延伸装置 (柴山科学機械製) を用いて、温度 160℃、延伸速度 5 mm/min. の条件にて自由幅一軸延伸を施し +50 % 延伸することにより光学フィルムを得た。得られた光学フィルムは、負の複屈折性を示しており、3次元屈折率は  $n_x = 1.5671$ 、 $n_y = 1.5678$ 、 $n_z = 1.5677$  であり、光学フィルム厚さ 100 μm 当たりのフィルム面内の位相差量  $R_e = (n_x - n_y) d$  は -70 nm であった。ただし、ここで d は光学フィルム厚みである。これらより、得られた光学フィルムは負の複屈折性を示す位相差フィルムとして適したものであった。 10

## 【 0 0 6 2 】

## 実施例 2

1 リッターオートクレープに重合溶媒としてトルエン 400 ml、重合開始剤としてパーブチルネオデカノエート 0.001 モル、N-(2-メチルフェニル)マレイミド 0.42 モル、イソブテンを 4.05 モルとを仕込み、重合温度 60℃、重合時間 5 時間で重合反応を行い、N-(2-メチルフェニル)マレイミド-イソブテン共重合体 (重量平均分子量 (M<sub>w</sub>) = 160000、重量平均分子量 (M<sub>w</sub>) / 数平均分子量 (M<sub>n</sub>) = 2.7) を得た。 20

## 【 0 0 6 3 】

そして、得られた N-(2-メチルフェニル)マレイミド-イソブテン共重合体 50 重量% 及びアクリロニトリル-スチレン共重合体 (ダイセルポリマー製、商品名セビアン N080、重量平均分子量 (M<sub>w</sub>) = 130000、アクリロニトリル残基単位: スチレン残基単位 (重量比) = 29:71) 50 重量% からなるブレンド物を調整し、該ブレンド物の濃度が 25 重量% となるように塩化メチレン溶液を調整し、該塩化メチレン溶液を PET フィルム上に流延し、溶剤を揮発させて固化、剥離させることによりフィルムを得た。得られた剥離後のフィルムを更に 100℃ にて 4 時間、110℃ から 120℃ にかけて 10℃ 間隔にてそれぞれ 1 時間乾燥し、その後、真空乾燥機にて 120℃ で 4 時間乾燥して約 100 μm の厚みのフィルムを得た。 30

## 【 0 0 6 4 】

得られたフィルムは、光線透過率 88 %、ヘイズ 0.5 %、屈折率 1.56、ガラス転移温度 (T<sub>g</sub>) 150℃であり、このフィルムに亀裂は見られなかった。

## 【 0 0 6 5 】

該フィルムから 5 cm×5 cmの小片を切り出し、二軸延伸装置 (柴山科学機械製) を用いて、温度 170℃、延伸速度 5 mm/min. の条件にて自由幅一軸延伸を施し +50 % 延伸することにより光学フィルムを得た。得られた光学フィルムは負の複屈折性を示しており、3次元屈折率  $n_x = 1.5593$ 、 $n_y = 1.5600$ 、 $n_z = 1.5599$  であり、光学フィルム厚さ 100 μm 当たりのフィルム面内の位相差量  $R_e = (n_x - n_y) d$  は -70 nm であった。ただし、ここで d は光学フィルム厚みである。これらより、得られた光学フィルムは負の複屈折性を示す位相差フィルムとして適したものであった。 40

## 【 0 0 6 6 】

## 実施例 3

実施例 2 により得られた N-(2-メチルフェニル)マレイミド-イソブテン共重合体 90 重量% 及びアクリロニトリル-ブタジエン-スチレン共重合体 (ダイセルポリマー製、商品名セビアン VT-180、重量平均分子量 (M<sub>w</sub>) = 104400、重量平均分子量 (M<sub>w</sub>) / 数平均分子量 (M<sub>n</sub>) = 2.9) 10 重量% からなるブレンド物を調整し、該ブレンド物の濃度が 25 重量% となるように塩化メチレン溶液を調整し、該塩化メチレン溶液を PET フィルム上に流延し、溶剤を揮発させて固化、剥離させることによりフィル 50



ムを得た。得られた剥離後のフィルムを更に100℃にて4時間、120℃から160℃にかけて10℃間隔にてそれぞれ1時間乾燥し、真空乾燥機にて180℃で4時間乾燥して約100μmの厚みのフィルムを得た。

【0067】

得られたフィルムは、光線透過率88%、ヘイズ0.9%、屈折率は1.56、ガラス転移温度(T<sub>g</sub>)190℃であり、このフィルムに亀裂は見られなかった。

【0068】

該フィルムから5cm×5cmの小片を切り出し、二軸延伸装置(柴山科学機械製)を用いて、温度210℃、延伸速度5mm/min.の条件にて自由幅一軸延伸を施し+50%延伸することにより光学フィルムを得た。得られた光学フィルムは負の複屈折性を示しており、3次元屈折率 $n_x = 1.5573$ 、 $n_y = 1.5580$ 、 $n_z = 1.5579$ であり、光学フィルム厚さ100μm当たりのフィルム面内の位相差量 $R_e = (n_x - n_y)d$ は-60nmであった。ただし、ここでdは光学フィルム厚みである。これらより、得られた光学フィルムは負の複屈折性を示す位相差フィルムとして適したものであった。

10

【0069】

#### 実施例4

実施例1により得られたN-フェニルマレイミド-イソブテン共重合体40重量%及びアクリロニトリル-スチレン共重合体(ダイセルポリマー製、商品名セビアンN080、重量平均分子量(M<sub>w</sub>)=130000、アクリロニトリル残基単位:スチレン残基単位(重量比)=29:71)60重量%からなるブレンド物を調整し、該ブレンド物の濃度が25重量%となるように塩化メチレン溶液を調整し、該塩化メチレン溶液をPETフィルム上に流延し、溶剤を揮発させて固化、剥離させることによりフィルムを得た。得られた剥離後のフィルムを更に60℃にて4時間、80℃から90℃にかけて10℃間隔にてそれぞれ1時間乾燥し、真空乾燥機にて90℃で4時間乾燥して約100μmの厚みのフィルムを得た。

20

【0070】

得られたフィルムは、光線透過率88%、ヘイズ0.5%、屈折率1.57、ガラス転移温度(T<sub>g</sub>)140℃であり、このフィルムに亀裂は見られなかった。

【0071】

該フィルムから5cm×5cmの小片を切り出し、二軸延伸装置(柴山科学機械製)を用いて、温度130℃、延伸速度5mm/min.の条件にて自由幅一軸延伸により+50%延伸することにより光学フィルムを得た。得られた光学フィルムは負の複屈折性を示しており、3次元屈折率 $n_x = 1.5675$ 、 $n_y = 1.5678$ 、 $n_z = 1.5678$ であり、光学フィルム厚さ100μm当たりのフィルム面内の位相差量 $R_e = (n_x - n_y)d$ は-35nmであった。ただし、ここでdは光学フィルム厚みである。これらより、得られた光学フィルムは負の複屈折性を示す位相差フィルムとして適したものであった。

30

【0072】

#### 実施例5

自由幅一軸延伸を施し+50%延伸する代わりに、同時二軸延伸を施しフィルム面内の2方向に+50%延伸した以外は、実施例1と同様の方法により光学フィルムを得た。得られた光学フィルムは負の複屈折性を示しており、3次元屈折率 $n_x = 1.5667$ 、 $n_y = 1.5667$ 、 $n_z = 1.5670$ であり、光学フィルム厚さ100μm当たりのフィルム面内の位相差量 $R_{exy} = (n_x - n_y)d$ は0nmであり、フィルム面外の位相差量 $R_{exz} = (n_x - n_z)d$ は-35nmであった。ただし、ここでdは光学フィルム厚みである。これらより、得られた光学フィルムは負の複屈折性を示す位相差フィルムとして適したものであった。

40

【0073】

#### 比較例1

50

実施例 1 により得られた N-フェニルマレイミド-イソブテン共重合体の濃度が 25 重量%となるように塩化メチレン溶液を調整し、該塩化メチレン溶液を PET フィルム上に流延し、溶剤を揮発させて固化、剥離させることによりフィルムを得た。得られた剥離後のフィルムを更に 100℃にて 4 時間、120℃から 160℃にかけて 10℃間隔にてそれぞれ 1 時間乾燥し、真空乾燥機にて 180℃で 4 時間乾燥して約 100  $\mu$ m の厚みのフィルムを得た。

【 0 0 7 4 】

得られたフィルムは、光線透過率 92%、ヘイズ 0.3%、屈折率 1.57、ガラス転移温度 (T<sub>g</sub>) 192℃であり、このフィルムには微細な亀裂が確認された。

【 0 0 7 5 】

該フィルムから 5 cm × 5 cm の小片を切り出し、二軸延伸装置 (柴山科学機械製) を用いて、温度 210℃、延伸速度 15 mm/min. の条件にて自由幅一軸延伸により +50% 延伸することにより延伸フィルムを得た。この延伸フィルムは正の複屈折性を示しており、3 次元屈折率  $n_x = 1.5706$ 、 $n_y = 1.5699$ 、 $n_z = 1.5699$  であり、延伸フィルム厚さ 100  $\mu$ m 当たりのフィルム面内の位相差量  $R_e = (n_x - n_y) d$  は +70 nm であった。ただし、ここで d は延伸フィルム厚みである。得られた延伸フィルムは脆いものであった。

【 0 0 7 6 】

比較例 2

実施例 2 により得られた N-(2-メチルフェニル)マレイミド-イソブテン共重合体の濃度が 25 重量%となるように塩化メチレン溶液を調整し、該塩化メチレン溶液を PET フィルム上に流延し、溶剤を揮発させて固化、剥離させることでフィルムを得た。得られた剥離後のフィルムを更に 60℃にて 4 時間、80℃から 90℃にかけて 10℃間隔にてそれぞれ 1 時間乾燥し、真空乾燥機にて 90℃で 4 時間乾燥して約 100  $\mu$ m の厚みのフィルムを得た。

【 0 0 7 7 】

得られたフィルムは、光線透過率 88%、ヘイズ 0.5%、屈折率 1.56、ガラス転移温度 (T<sub>g</sub>) 202℃であり、このフィルムには微細な亀裂が確認された。

【 0 0 7 8 】

該フィルムから 5 cm × 5 cm の小片を切り出し、二軸延伸装置 (柴山科学機械製) を用いて、温度 220℃、延伸速度 5 mm/min. の条件にて自由幅一軸延伸により +50% 延伸することにより延伸フィルムを得た。この延伸フィルムは負の複屈折性を示しており、3 次元屈折率  $n_x = 1.5538$ 、 $n_y = 1.5550$ 、 $n_z = 1.5550$  であり、延伸フィルム厚さ 100  $\mu$ m 当たりのフィルム面内の位相差量  $R_e = (n_x - n_y) d$  は -120 nm であった。ただし、ここで d は光学フィルム厚みである。得られた延伸フィルムは脆いものであった。

【 0 0 7 9 】

比較例 3

アクリロニトリル-スチレン共重合体 (ダイセルポリマー製、商品名セビアン N080、重量平均分子量 (M<sub>w</sub>) = 130000、アクリロニトリル残基単位: スチレン残基単位 (重量比) = 29:71) の濃度が 60 重量%となるように塩化メチレン溶液を調整し、該塩化メチレン溶液を PET フィルム上に流延し、溶剤を揮発させて固化、剥離させることによりフィルムを得た。得られた剥離後のフィルムを更に 60℃にて 4 時間、80℃から 90℃にかけて 10℃間隔にてそれぞれ 1 時間乾燥し、真空乾燥機にて 90℃で 4 時間乾燥して約 100  $\mu$ m の厚みのフィルムを得た。

【 0 0 8 0 】

得られたフィルムは、光線透過率 92%、ヘイズ 0.3%、屈折率 1.57、ガラス転移温度 (T<sub>g</sub>) 102℃であった。

【 0 0 8 1 】

該フィルムから 5 cm × 5 cm の小片を切り出し、二軸延伸装置 (柴山科学機械製) を

10

20

30

40

50

用いて、温度  $120^{\circ}\text{C}$ 、延伸速度  $5\text{ mm/min}$  の条件にて自由幅一軸延伸により  $+50\%$  延伸することにより延伸フィルムを得た。得られた延伸フィルムは負の複屈折性を示しており、3次元屈折率  $n_x = 1.5638$ 、 $n_y = 1.5650$ 、 $n_z = 1.5650$  であり、延伸フィルム厚さ  $100\text{ }\mu\text{m}$  当たりのフィルム面内の位相差量  $R_e = (n_x - n_y)d$  は  $-120\text{ nm}$  であった。ただし、ここで  $d$  は光学フィルム厚みである。得られた延伸フィルムは耐熱性に劣るものであった。

【図面の簡単な説明】

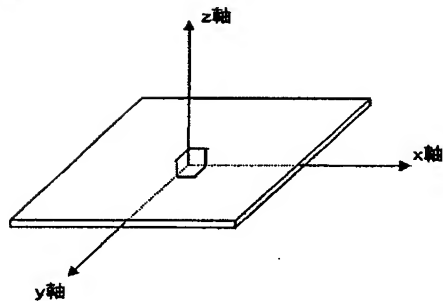
【0082】

【図1】光学フィルムの3次元屈折率の軸方向を示す図である。

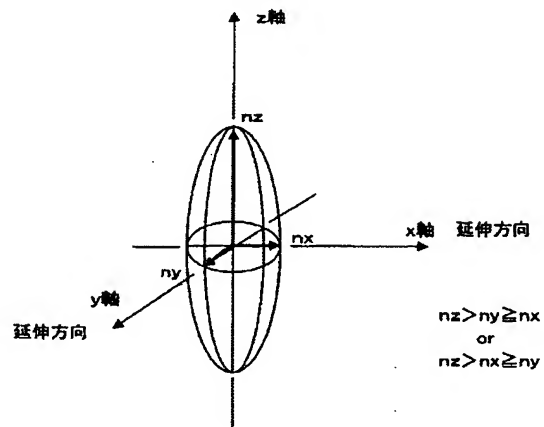
【図2】一軸延伸による負の複屈折性を示す光学フィルムの3次元屈折率を示す図である 10

【図3】二軸延伸による負の複屈折性を示す光学フィルムの3次元屈折率を示す図である

【図1】



【図3】



【図2】

